

51

Int. Cl.:

C 07 c, 119/04

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



52

Deutsche Kl.: 12 o, 22

10

11

21

22

43

# Offenlegungsschrift 2058 032

Aktenzeichen: P 20 58 032.9

Anmeldetag: 25. November 1970

Offenlegungstag: 31. Mai 1972

Ausstellungspriorität: —

30

Unionspriorität

32

Datum: —

33

Land: —

31

Aktenzeichen: —

54

Bezeichnung: Verfahren und Vorrichtung zur kontinuierlichen Herstellung von Isocyanaten

61

Zusatz zu: —

62

Ausscheidung aus: —

71

Anmelder: Zimmer AG, Planung und Bau von Industrieanlagen,  
6000 Frankfurt

Vertreter gem. § 16 PatG: —

72

Als Erfinder benannt: Corsepius, Horst, Dipl.-Chem. Dr., 6000 Frankfurt;  
Jendrusch, August, 6381 Obererlenbach;  
Rosche, Wilhelm, 6361 Petterweil

DT 2058032

2058032

**DR. KURT-RUDOLF EIKENBERG**  
PATENTANWALT

8 HANNOVER · SCHACKSTRASSE 1 · TELEFON (0511) 814066 · KABEL PATENTION HANNOVER

Vickers-Zimmer AG

837/78

Verfahren und Vorrichtung zur kontinuierlichen Herstellung von Isocyanaten

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zu kontinuierlichen Herstellung von Isocyanaten aus organischen Aminen und Phosgen in Gegenwart eines inerten Lösungsmittels. Zugleich bezieht sich die Erfindung auch auf eine Vorrichtung zur Durchführung dieses Verfahrens.

Es ist bekannt (Dt PSn 952 086, 949 228 und 958 558), Isocyanate durch Umsetzung von organischen Aminen mit Phosgen in einem inerten Lösungsmittel herzustellen. Diese Reaktion wird

209823/1129

im allgemeinen zweistufig durchgeführt. In der ersten Verfahrensstufe, der sogenannten "Kaltphosgenierung", werden dabei die in dem Lösungsmittel gelösten bzw. (im Falle von im Lösungsmittel unlöslichen Aminen) suspendierten Reaktionspartner mit Phosgenüberschuß unter guter Vermischung in einem Reaktionskessel bei Temperaturen von ca. 0° C behandelt, wobei sich zumeist im Lösungsmittel unlösliche Zwischenprodukte ergeben. Der Austrag aus der ersten Verfahrensstufe wird dann in der zweiten Stufe, der sogenannten "Heißphosgenierung", ggf. unter weiterer Zugabe von Phosgen, bei Temperaturen von etwa 150-200° C zu den entsprechenden Isocyanaten ausreagiert. Das dabei gebildete HCl sowie das überschüssige Phosgen werden danach durch Entgasung abgetrennt, und anschließend werden die Isocyanate durch Abdestillieren isoliert. Die Durchführung der Heißphosgenierung geschieht bei den bekannten Verfahren in einem im wesentlichen senkrechten, mantelbeheizten und von unten nach oben durchströmten Reaktionsrohr, das mit Raschigringen gefüllt ist.

Die erzielbaren Ausbeuten sind vom angewendeten Phosgenüberschuß abhängig, sie liegen bei den bekannten Verfahren, die mit einem Phosgenüberschuß von über 10% arbeiten, in der Größenordnung von 70-90% der Theorie. Ein höher Phosgenüberschuß führt jedoch zu einer beträchtlichen Belastung der nachgeschalteten Abtrenn- und Reinigungsanlagen und damit zu höheren Verfahrenskosten, ganz abgesehen davon, daß sich die Ausbeuten auch durch Erhöhung des Phosgenüberschusses nicht beliebig steigern lassen.

Mit der Erfindung wird demgegenüber ein zweistufiges Verfahren angegeben, das es gestattet, unter sonst gleichen Reaktionsbedingungen mit einem auf z.B. 8% und weniger verringerten Phosgenüberschuß Ausbeuten von über 90-95% der Theorie zu erzielen. Dies erreicht die Erfindung dadurch, daß das Reaktionsgemisch aus der Kaltphosgenierung in der Stufe der Heißphosgenierung unter ständiger mechanischer Durchmischung mit langsam ansteigendem Temperaturprofil durch einen sich waagerecht erstreckenden Reaktionsraum geleitet wird. Der Begriff "waagerecht" ist dabei nicht nur im strengen mathematischen Sinne zu verstehen, sondern soll auch eine geringfügige Neigung von einigen wenigen Winkelgraden gegenüber der Waagerechten mit einschließen, beispielsweise derart, daß der Auslaß des waagerechten Reaktionsraumes etwas höher liegt als der Einlaß.

Die Erfindung beruht auf der konsequenten Anwendung der Erkenntnis, daß eine nennenswerte Beschleunigung des Reaktionsablaufes und damit eine Steigerung der Ausbeuten erreicht werden kann, wenn ein allmählicher thermischer Übergang zwischen der Kaltphosgenierung und der Heißphosgenierung sowie eine stetige Temperaturzunahme während der Heißphosgenierung herbeigeführt und zugleich die Möglichkeit geschaffen wird, daß das sich bei der Umsetzung bildende, den Reaktionsablauf hemmende HCl rasch aus dem Reaktionsgemisch austreten kann.

Bei der bekannten Durchführung der Heißphosgenierung in einem von unten nach oben durchströmten, stehenden Rohr muß das sich in der Heißphosgenierung bildende HCl das gesamte Reaktionsgemisch hindurch bis zum Abzug am Kopf des Reaktionsrohres durchwandern, was zwangsläufig zu einer Anreicherung von HCl im oberen Bereich des Rohres, also im oberen Abschnitt des Reaktionsrohres führt. Dies hat zur Folge, daß die sich im Verlaufe

der Reaktion verringende Phosgen-Konzentration gegen eine sich ständig erhöhende Konzentration an Reaktionshemmer wirken muß und damit die Triebkraft der Reaktion zunehmend geringer wird. Aus diesem Grunde sind bei den bekannten Verfahren in der Heißphosgenierung meistens zwei hintereinander geschaltete stehende Reaktionsrohre vorgesehen, die beide am Kopf einen Abfluß für das HCl besitzen und bei denen am Boden des zweiten Rohres sogar noch erneut Phosgen zur Erhöhung der Reaktionstriebkraft zugespeist wird.

Wenn dagegen nach Maßgabe der Erfindung die Heißphosgenierung in einem waagerechten Reaktionsraum stattfindet, braucht das sich bildende HCl nicht das gesamte Reaktionsgemisch zu durchströmen, sondern kann sich in jeder Reaktionszone in einem Dampfraum sammeln und von dort ohne Wiedereintritt in das Reaktionsgemisch abziehen. Dies bedeutet eine Verminderung der Reaktionshemmung und kommt damit einer effektiven Erhöhung der wirksamen Phosgen-Konzentration gleich.

Diese Wirkung wird noch durch die sorgfältige Temperatursteuerung in Verbindung mit der ständigen guten Durchmischung des Reaktionsgemisches ergänzt. Das die Kaltphosgenierung verlassende Material ist in der Regel eine pastöse Masse, bestehend aus den sich in der Kaltphosgenierung gebildeten, im Lösungsmittel schwer und nicht löslichen Zwischenprodukten sowie restlichen Ausgangsstoffen. Es wurde gefunden, daß eine plötzliche Erhitzung dieser Masse auf die Reaktionstemperatur der Heißphosgenierung (wie sie bei den bekannten senkrechten, auf einheitliche Temperatur mantelbeheizten und mit Raschigerringen gefüllten Reaktionsrohren stattfindet) zu unerwünschten Nebenreaktionen, nämlich der Bildung von schwersiedenden Teerprodukten anlaß gibt, und daß außerdem bei einem starken Temperatursprung das Phosgen zu

plötzlich ausdampft, folglich also der in der Kaltstufe an sich vorhandene Phosgenüberschuß verlorenggeht. Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren wird dagegen diese Masse vom Einlaß des Heißphosgenierungs-Raumes an entsprechend dem Reaktionsfortschritt langsam (vorzugsweise mit linear ansteigendem Temperaturprofil) aufgeheizt, bis sie am Auslaß des Heißphosgenierungs-Raumes die Endtemperatur erreicht hat. Die Mischeinrichtungen besorgen dabei, daß sich das gewünschte Temperaturprofil innerhalb der gesamten Reaktionsmasse gleichmäßig (also nicht nur in deren Randzonen) einstellt, die Feststoffe stetig entsprechend dem Reaktionsfortschritt in Lösung gehen und das sich bildende HCl auch aus tiefer gelegenen Schichten der zunächst ziemlich viskosen Reaktionsmasse verhältnismäßig schnell abgeführt wird. Diese Arbeitsweise ist mit den bekannten senkrechten Reaktionsrohren nicht möglich.

Insgesamt ermöglicht somit das erfindungsgemäße Verfahren eine optimale Durchführung der Umsetzung von Aminen und Phosgen, mit der Folge, daß sich mit einem geringeren Phosgenüberschuß als bisher eine höhere Ausbeute als bisher einstellt. Auf einer Einspeisung von zusätzlichem Phosgen in die Stufe der Heißphosgenierung kann dabei ganz verzichtet werden, es entsteht also in einem Zuge aus dem Material der Kaltphosgenierung eine ausreagierte Lösung des Endprodukts.

Bevorzugt wird das erfindungsgemäße Verfahren in einer Vorrichtung durchgeführt, die aus einem Reaktionsge-

fäß für die Kaltphosgenierung mit Kühl- und Röhreinrichtungen sowie einem diesem nachgeschalteten, zweiten heizbaren Reaktionsgefäß für die Heißphosgenierung besteht und die sich dadurch kennzeichnet, daß das heizbare Reaktionsgefäß für die Heißphosgenierung ein waagrecht liegendes Rohr ist, durch das sich in Längsrichtung eine mit Röhreinrichtungen besetzte Welle hindurcherstreckt.

Eine derartige Vorrichtung in Form eines waagerechten, mit Röhreinrichtungen versehenen Rohres gewährleistet die gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren vorgesehenen Bedingungen in einfacher und betriebssicherer Weise. Zwar ist die Verwendung eines waagerechten Reaktionsrohres bei der Herstellung von Isocyanaten für sich bereits bekannt (Dt PS 1 037 444). Der bekannte Reaktor hat jedoch mit der Erfindung keine näheren Berührungspunkte. Er ist vielmehr für ein einstufiges Verfahren bestimmt, bei dem die Reaktionspartner mit Überdruck unter Verwirbelung durch das Reaktionsrohr hindurchgeleitet und anschließend zur Befreiung von den gelösten Gasen (HCl und Phosgen) entspannt werden. Damit sind bei dem bekannten Reaktor weder die Wirkungen der Erfindung angestrebt noch werden deren Vorteile erreicht. Der bekannte Reaktor muß sogar mit einem Phosgenüberschuß von mindestens 25%, vorzugsweise 70-110% gefahren werden.

Zur Beheizung des waagerechten Reaktionsrohres sind in Weiterbildung der Erfindung zwei Maßnahmen vorgesehen,

die alternativ oder auch gemeinsam miteinander verwendet werden können. Die eine Maßnahme besteht darin, daß das waagerechte Reaktionsrohr von einer in einzelne, separat beheizbare Abschnitte unterteilten Mantelheizung umgeben ist, während die andere Maßnahme darin besteht, daß am Ende des waagerechten Reaktionsrohres ein mit Thermosyphonströmung arbeitender Wärmetauscher angeordnet ist (dessen Wirkungsweise weiter unten noch erläutert wird).

Im übrigen hat es sich als besonders zweckmäßig erwiesen, am Anfang und am Ende des waagerechten Reaktionsrohres je ein senkrechtes Reaktionsrohr derart anzuordnen, daß die drei Rohre zusammen ein System von kommunizierenden Röhren bilden, wobei das eine senkrechte Reaktionsrohr zur Kaltphosgenierung und das andere senkrechte Reaktionsrohr zur Entgasung des Reaktionsproduktes dient. Bei einer solchen Anordnung kann auf jegliche Förderpumpen oder ähnliche Einrichtungen im Reaktionsbereich verzichtet werden, denn die Produktströmung stellt sich automatisch nach Maßgabe des Zulaufs der Reaktionspartner zum oberen Ende des Kaltphosgenierungs-Rohres bzw. der Produktabnahme am oberen Ende des Entgasungsrohres ein. Außerdem gestattet eine solche Anordnung, die Kaltphosgenierungs-Stufe ohne Zwischenschaltung von Rohrleitungen unmittelbar an die nachfolgende Heißphosgenierungs-Stufe und diese wiederum unmittelbar an die anschließende Entgasungs-Stufe anzuschließen.



Die Erfindung ist ganz allgemein für die Herstellung aller Isocyanate, die auch sonst durch Reaktion von Aminen mit Phosgen erhalten werden können, anwendbar, wobei auch alle üblichen Lösungsmittel, wie beispielsweise Chlorbenzol, o-Dichlorbenzol oder  $\alpha$ -Chlornaphthalin benutzt werden können. Nachfolgend wird ein Ausführungsbeispiel der Erfindung nämlich die Herstellung von Phenylisocyanat aus Anilin und Phosgen mit  $\alpha$ -Chlornaphthalin als Lösungsmittel näher erläutert, und zwar anhand der zeichnerischen Darstellung, die schematisch eine bevorzugte Ausführungsform einer Anlage zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens wiedergibt.

Das Kernstück der zeichnerisch dargestellten Anlage ist die Anordnung von drei U-förmig miteinander verbundenen Reaktionsrohren 1, 2 und 4, die zusammen ein System von kommunizierenden Röhren bilden. Von diesen Reaktionsrohren stehen die Rohre 1 und 4 senkrecht, während sich das Rohr 2 am unteren Ende der Rohre 1 und 4 waagrecht zwischen diesen erstreckt.

Das Reaktionsrohr 1 dient zur Durchführung der Kaltphosgenierung. Es ist mit Zufuhrleitungen 10 und 11 zur Zufuhr von Phosgen-Lösung bzw. von Amin-Lösung oder -Suspension versehen und besitzt einen Kühlmantel 12, durch den es auf einer unterhalb Zimmertemperatur liegenden Temperatur gehalten werden kann. Im Inneren des Rohres 1 befindet sich eine in Rohrlängsrichtung verlaufende Rührwelle 13, die von einem Antrieb 14 aus angetrieben wird und die Rühreinrichtungen 15 trägt. Die Rühreinrichtungen sind im dargestellten Beispiel eine schraubenfederförmige Wendel, sie können aber auch jede andere geeignete Form haben, z.B. als Paddelrührer ausgebildet sein. Entscheidend ist dabei in jedem Fall lediglich die Erzielung einer guten Mischwirkung.

Das waagerechte Reaktionsrohr 2, das sich unmittelbar an den Auslaß des Reaktionsrohres 1 anschließt, besitzt einen in mehrere Abschnitte 20a bis 20c unterteilten Heizmantel, dessen einzelne Abschnitte (im gezeigten Beispiel drei Abschnitte) separat betrieben werden. Normalerweise werden diese Abschnitte auf unterschiedliche Temperaturen beheizt, doch es können auch einzelne Abschnitte, insbesondere der sich unmittelbar an die Kaltstufe anschließende erste Abschnitt 20a, auf Kühlung geschaltet sein. Zusätzlich oder alternativ dazu kann zur Beheizung des im Rohr 2 strömenden Materials aber auch am Ende des Rohres 2 ein Wärmetauscher 3 vorgesehen sein, dessen Wirkungsweise weiter unten erläutert wird. In jedem Fall sind die Heizeinrichtungen (Heizmantel 20 und/oder Wärmetauscher 3) so beschaffen, daß sich in dem Materialstrom längs des Rohres 2 ein vorzugsweise im wesentlichen linear von der Größenordnung  $0^{\circ}\text{C}$  (der Endtemperatur des Kaltphosgenierungs-Rohres 1) aus auf die Größenordnung von  $170-200^{\circ}\text{C}$  ansteigendes Temperaturprofil einstellt. Im Inneren des Rohres 2 befindet sich ähnlich wie beim Rohr 1 eine sich durch das Rohr hindurcherstreckende Rührwelle 21, die mit einem Antrieb 22 verbunden ist und Rühreinrichtungen 23 (entsprechend den Rühreinrichtungen 15) trägt.

Die sich während des Reaktionsablaufes bildenden Dämpfe sammeln sich im oberen Zylinderabschnitt des Rohres 2 und werden mit über das Auslaßende des Rohres 2 abgezogen. Dazu ist es zweckmäßig, jedoch nicht unbedingt nötig, das Rohr 2 mit einer geringen Neigung von einigen wenigen Winkelgraden derart zu versehen, daß das Auslaßende des Rohres 2 etwas höher liegt als das Einlaßende. Diese Maßnahme kann nicht nur den Abzug der Dämpfe erleichtern, sondern sich auch günstig auf die Temperaturführung auswirken.

Das Entgasungsrohr 4 ist mit einer Außenheizung 40 versehen und schließt sich an den Auslaß des waagerechten Rohres 2 an. Der Betrieb des Entgasungsrohres 4 ist so eingestellt, daß die das Rohr 2 verlassende, ausreagierte Lösung im wesentlichen auf der Endtemperatur des Rohres 2 gehalten bleibt. In dem Entgasungsrohr, das mit Füllkörpern gefüllt oder mit üblichen Kolonneneinbauten versehen sein kann, trennt sich ein Teil der aus HCl und Phosgen, aber auch aus Lösungsmittel und Isocyanaten bestehenden Dämpfe von der Isocyanat-Lösung. Die Dämpfe sammeln sich im Kopf des Rohres 4 und werden über eine Leitung 43 abgezogen, während die Isocyanat-Lösung über eine Leitung 41 und ein Entspannungsventil 42 abgezogen wird. Die bei der Reaktion im waagerechten Rohr 2 entstehenden, ebenfalls das Nebenprodukt HCl enthaltenden Dämpfe, die sich im oberen Zylinderabschnitt des waagerechten Rohres 2 sammeln, entweichen ebenfalls durch das Entgasungsrohr 4 hindurch über die Leitung 43. Die Tatsache, daß diese Dämpfe das Entgasungsrohr 4 durchströmen, stört dabei weiter nicht, da in dem Entgasungsrohr 4 keine Reaktion mehr stattfindet.

Der schon erwähnte Wärmetauscher 3 ist am Auslaß des waagerechten Reaktionsrohres 2 im wesentlichen unterhalb des Entgasungsrohres 4 angeordnet. Dieser Wärmetauscher ist zweckmäßig ein Röhrenwärmetauscher, dessen

Röhren außen von Heizdampf umströmt werden. Er arbeitet nach dem Prinzip der Thermosyphonströmung. Das Produkt aus dem Rohr 2, und zwar insbesondere aus dem unteren Zylinderabschnitt des Rohres 2, strömt zum Wärmetauscher 3, wird dort aufgeheizt und strömt sodann (gewissermaßen um die Ecke) im Gegenstrom in das Rohr 2, und zwar in dessen oberen Zylinderabschnitt zurück. Dadurch liegen im Rohr 2 einander entgegengerichtete, unterschiedlich temperierte Ströme vor, die unter der Einwirkung des Mischorgans im direkten Wärmeaustausch miteinander stehen, und es stellt sich im Rohr 2 ein Temperaturprofil ein, das sich aus den jeweiligen lokalen Mischtemperaturen ergibt und das im wesentlichen linear ist.

Die Anordnung kann so getroffen sein, daß das lineare Temperaturprofil nur durch den Wärmetauscher 3 erzeugt wird oder daß dessen Bildung durch Zusammenwirken des Wärmetauschers 3 mit der Mantelheizung 20 erfolgt oder daß es nur durch die Mantelheizung 20 erzeugt wird, d.h. der Wärmetauscher 3 zum Fortfall kommt. Die Verwendung des Wärmetauschers 3 ist allerdings bevorzugt, weil sich damit das gewünschte lineare Temperaturprofil verfahrenstechnisch einfacher und sicherer einstellen läßt als nur mit der Mantelheizung, und weil dann außerdem die aus der Kaltphosgenierung kommenden Zwischenprodukte ohne Notwendigkeit der Berührung mit beheizten Wänden erhitzt und zur Umsetzung gebracht werden können.

Die beschriebene Wirkungsweise des Wärmetauschers 3 beruht auf dem positiven Temperaturgradienten zwischen dem Auslaß des Reaktionsrohres 2 und dem Auslaß des Reaktionsrohres 1, die zur einer Thermosyphonströmung vom Wärmetauscher 3 zum Rohr 2 Anlaß gibt. Dagegen kann eine Thermosyphonströmung vom Wärmetauscher 3 zum Entgasungsrohr 4 nicht eintreten, weil zwischen diesen Anlageteilen kein nennenswerter Temperaturgradient vorhanden ist.

Die über die Leitung 43 aus dem Entgasungsrohr 4 abgeführten Dämpfe gelangen in einen Gaskühler 6, wo sie gekühlt und kondensiert werden. Der Gaskühler 6 besitzt mehrere (im gezeigten Beispiel drei) übereinander angeordnete Kühlsektionen 61, 62 und 63, die von unten nach oben mit zunehmend tiefer werdender Temperatur betrieben werden. Das sich im Gaskühler bildende Kondensat, das im wesentlichen aus Phosgen, Lösungsmittel und Isocyanat besteht, rieselt im Gegenstrom zum aufsteigenden HCl-Gas herunter. Dadurch kommt es nicht zur Verkrustung der Kühlflächen infolge einer Bildung von Carbonidsäuredchloriden aus Isocyanat und HCl bei tieferen Temperaturen, da die Carbonidsäuredchloride in Phosgen gut löslich sind. Das Kondensat aus dem Gaskühler 6 läuft über eine Leitung 64 zum Kaltphosgenierungs-Rohr 1 zurück, während das Abgas HCl über eine Leitung 65 und ein Entspannungsventil 66 zur üblichen HCl-Aufarbeitungsanlage geführt wird.

Das über die Leitung 41 aus dem Entgasungsrohr 4 abgezogene Produkt, bestehend aus einer Isocyanat-Lösung mit Gehalten an Phosgen und HCl, wird nach Entspannung im Entspannungsventil 42 zur weiteren Entgasung in eine Entgasungskolonne 5 eingeleitet. Diese Entgasungskolonne 5 entspricht im Aufbau weitgehend dem Entgasungsrohr 4, d.h. sie besitzt die Form eines aufrechtstehendes Rohrs, das mit Füllkörpern gefüllt oder mit üblichen Kolonneneinbauten versehen sein kann und das eine Außenheizung 50 besitzt. Zur Unterstützung der Entgasung kann über eine Leitung 51 Inertgas in den Boden der Kolonne 5 eingeführt werden. Diese Maßnahme kann übrigens auch zusätzlich noch beim Entgasungsrohr 4 getroffen sein. Zweckmäßig wird die Kolonne 5 ebenso wie auch das Rohr 4 überflutet betrieben.

In der Entgasungskolonne 5 wird das Produkt weitgehend von HCl und Phosgen befreit. Es läuft dann über eine Leitung 52 zur endgültigen Aufbereitung, d.h. zur Feinentgasung und Destillation. Die Abgase aus der Feinentgasung werden über eine Leitung 55 zurückgeführt und zusammen mit den über eine Leitung 53 abgezogenen Abgasen aus der Entgasungskolonne 5 zum Gaskühler 6 geleitet. In die Leitung 53 ist dabei noch ein Kompressor 54 eingeschaltet.

Die Wirkungsweise der vorangehend beschriebenen Anlage sei an folgendem Zahlenbeispiel gezeigt:

Pro Stunde wurden eine Lösung von 32,8 kg Phosgen in 100 kg  $\alpha$ -Chlornaphthalin und eine Lösung von 28,5 kg Anilin in 100 kg  $\alpha$ -Chlornaphthalin über die Leitungen 10 bzw. 11 kontinuierlich in das Kaltphosgenierungs-Rohr 1 eingespeist. In den übrigen Teilen der Anlage wurden dabei folgende Parameter eingehalten:

Temperatur am Einlaßrohr 1	0° C
Temperatur am Einlaßrohr 2	+30° C
Temperatur am Auslaßrohr 2	+150° C
Temperatur am Auslaßrohr 4	+150° C
Temperatur am Auslaß Kolonne 5	+150° C
Temperatur im Kühler 6, Sektion 61	-5° C
Temperatur im Kühler 6, Sektion 62	-40° C
Druck in der Anlage bis zum Entspannungsventil 42 bzw. 66	2 atü
Versuchsdauer:	21 Tage ohne Unterbrechung

Über die Leitung 52 wurde aus der Entgasungskolonne 5 eine farblose bis gelbliche Lösung entnommen, die in einer Feinentgasung und Destillation kontinuierlich aufgearbeitet wurde. Dabei ergaben sich stündlich ca. 35,5 kg reines Phenylisocyanat. Dies entspricht einer Ausbeute über alle Reaktionsstufen (Reaktion, Entgasung und Destillation) von 98,7% der Theorie, bezogen auf das eingesetzte Anilin. Der Überschuß an Phosgen betrug ca. 8% der theoretischen Menge.

- Ansprüche -

-15-

A n s p r ü c h e :

1. Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten aus organischen Aminen und Phosgen in Gegenwart eines inerten Lösungsmittels, wobei das Reaktionsgemisch in einer ersten Verfahrensstufe (Kaltphosgenierung) bei Temperaturen von etwa  $0^{\circ}\text{C}$  behandelt und anschließend in einer zweiten Verfahrensstufe (Heißphosgenierung) bei Temperaturen bis zu etwas  $200^{\circ}\text{C}$  ausreagiert wird, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsgemisch aus der Kaltphosgenierung in der Stufe der Heißphosgenierung unter ständiger mechanischer Durchmischung mit langsam ansteigendem Temperaturprofil durch einen sich waagrecht erstreckenden Reaktionsraum geleitet wird.

2. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1, bestehend aus einem Reaktionsgefäß für die Kaltphosgenierung mit Kühl- und Röhreinrichtungen sowie einem diesen nachgeschalteten zweiten, heizbaren Reaktionsgefäß für die Heißphosgenierung, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsgefäß für die Heißphosgenierung ein waagrecht liegendes Rohr (2) ist, durch das sich in Längsrichtung eine mit Röhreinrichtungen (23) besetzte Welle (21) hindurcherstreckt.



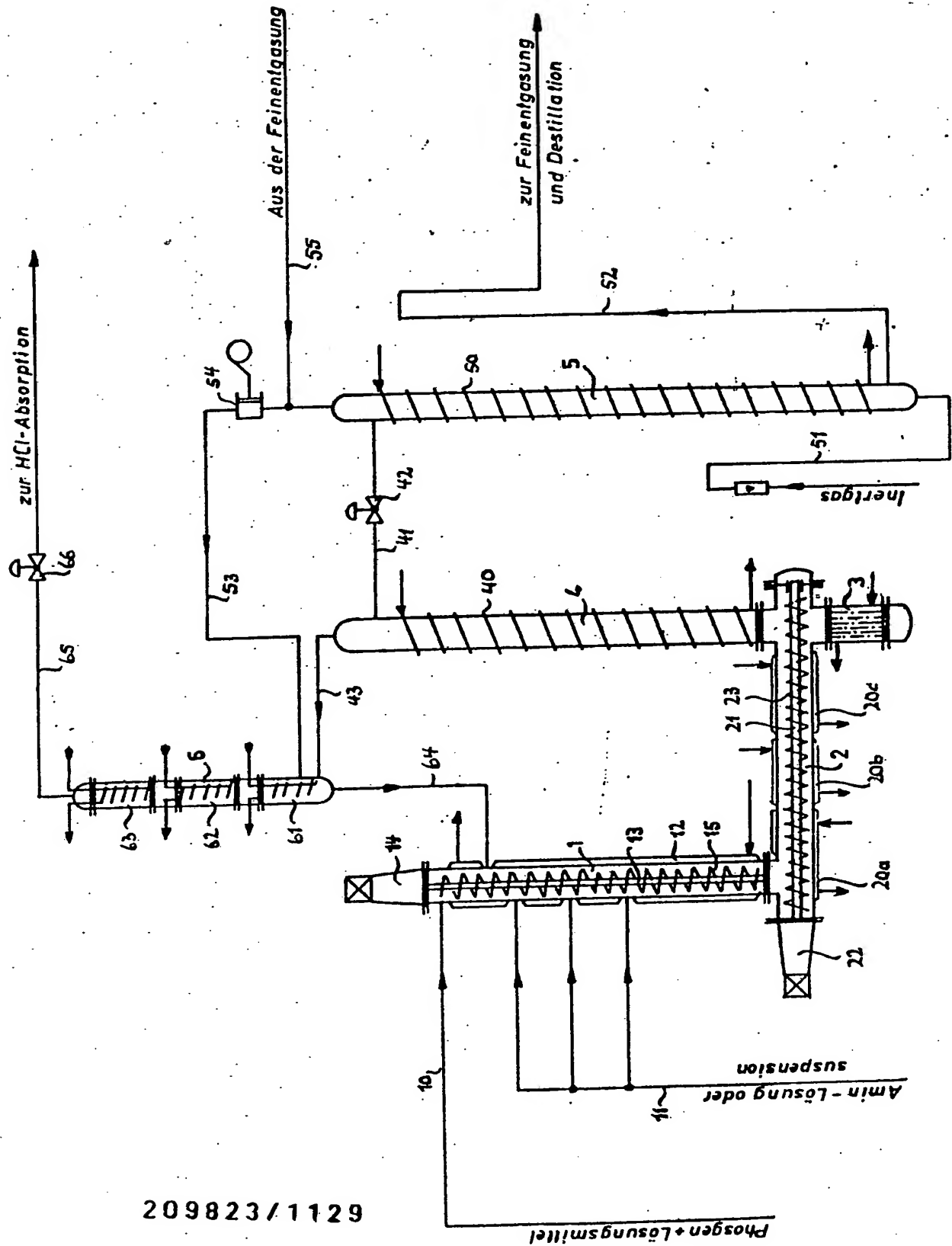
3. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das waagerechte Reaktionsrohr (2) von einer im einzelne, separat beheizbare Abschnitte unterteilten Mantelheizung (20) umgeben ist.

4. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß am Ende des waagerechten Reaktionsrohres ein mit Thermosyphonströmung arbeitender Wärmetauscher 3 angeordnet ist,

5. Vorrichtung zu Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 2 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß am Anfang und am Ende des waagerechten Reaktionsrohres (2) je ein senkrechtes Reaktionsrohr (1,4) angeordnet ist, derart, daß die drei Rohre zusammen ein System von kommunizierenden Röhren bilden, wobei das eine Rohr (1) zur Durchführung der Kaltphosgenierung und das andere Rohr (4) zur Entgasung des Reaktionsproduktes dient.

KRE/b8

-17-



209823/1129